

高分解能光電子分光装置の建設と 高温超伝導体フェルミ準位微細電子構造

東北大学理学研究科物理学専攻 放射光・光電子物理研究室
佐藤 宇史

目次

第一章	序論	690
第二章	高分解能光電子分光装置の建設	691
	2-1 装置の概要	691
	2-2 試料槽	691
	2-3 試料台、角度分解機構	692
	2-4 温度制御系	692
	2-5 励起光源系	693
	2-6 分解能向上、性能測定	694
	2-7 達成スペック	695
第三章	高温超伝導体 Bi2212 の角度分解光電子分光	696
	3-1 研究背景	696
	3-2 本研究の目的	696
	3-3 実験	697
	3-4 結果と考察	697
第四章	高温超伝導体 LSCO の角度分解能光電子分光	699
	4-1 研究背景	699
	4-2 本研究の目的	699
	4-3 実験	699
	4-4 結果と考察	700
第五章	まとめ	701
	参考文献	702
	謝辞	703

要旨

高温超伝導体のフェルミ準位近傍の微細電子構造を決定するために、高分解能光電子分光装置の建設を行った。その結果、従来型の約 100 倍の強度をもつマイクロ波型高輝度放電管とモノクロメーターの使用による高輝度単色光での測定の実現、極低温($\sim 4\text{K}$)での測定、二軸角度分解光電子分光の実現、超高真空、超高エネルギー分解能($\Delta E=4.8\text{meV}$)を実現した。建設した装置と放射光施設を用いて、高温超伝導体 Bi2212 の角度分解光電子分光を行った。その結果、擬ギャップは超伝導ギャップから連続的に変化すること、超伝導ギャップサイズのドーピング依存性が擬ギャップの閉じる温度 T^* にスケールすること等を見出した。このことは、角度分解光電子分光で測定された擬ギャップが超伝導の前駆現象であることを示唆している。また、高温超伝導体 $\text{La}_{1.85}\text{Sr}_{0.15}\text{CuO}_4$ の超高分解能光電子分光の温度変化を測定した結果、フェルミ準位から 30meV 程度の大きさをもつ擬ギャップを観測した。得られた擬ギャップの温度変化は、磁化率やホール係数の温度依存性とよく対応する。このことから観測された擬ギャップが反強磁性相関の発達に対応すると考えられる。この結果は LSCO で観測された擬ギャップが Bi2212 において角度分解光電子分光で決定された擬ギャップとは異なることを示唆している。

*この論文は、私の修士論文「高分解能光電子分光装置の建設と高温超伝導体フェルミ準位微細電子構造」を、物性研究に掲載する原稿として書き直したものである。まとめ直す段階で、東北大学に提出した修士論文と記述に若干の違いが生じたことをあらかじめ断っておく。

第一章 序論

光電子分光のエネルギー分解能は、最近著しい発展を遂げてきた。それにより、今まで分解能の制約により見えてこなかった様々な微細電子構造が明らかになりつつある。特に輸送現象や磁性などの物性に深く関与しているフェルミ準位近傍の電子状態は、光電子分光のみならず物性理解において欠かせない情報である。例えば、高温超伝導体における超伝導ギャップ観測や、近藤共鳴ピーク、f 電子の分散、光電子スペクトルの形状などの詳細な議論は、高分解能を達成して初めて可能になる。高温超伝導体の角度分解光電子分光に話を限ると、超伝導ギャップや擬ギャップの温度変化の精密測定などはすべてギャップサイズが大きい Bi2212 に集中してきた現状がある。これまで他の高温超伝導体は、 T_c が Bi2212 に比べて比較的低いため従来のエネルギー分解能では不十分だったこと等から角度分解光電子分光によるギャップの直接観測は困難であった。その様な状況の中で、さらに高いエネルギー分解能を追求すれば、それらの物質の超伝導ギャップの直接観測を含め、よりエネルギー領域の小さい物理や、精密な議論ができるようになる事は言うまでもない。具体的には、高温超伝導体では数 meV から 10 数 meV のギャップが期待される物質などで、その超伝導ギャップの開閉、その対称性、擬ギャップの観測をすることは高温超伝導機構を理解する上でより普遍的な情報を得ることにつながる。また、従来の Bi2212 でも、スペクトルの形状などの詳細な振る舞いは、分解能の制限で決定的な事は言えなかった。スペクトルの詳細な温度変化や、ドーピング依存性を測定することによって超伝導ギャップと擬ギャップの起源さらには超伝導機構に関しての情報が得られると期待される。これらを可能にするような装置を建設して、高温超伝導体、さらにそれに限らず様々な強相関物質のフェルミ準位近傍の電子状態を明らかにすることは強相関電子系の物理を理解する上で重要である。本研究では、高温超伝導体の微細電子構造を決定するために高分解能角度分解光電子分光装置の建設を行い、超高分解能($\Delta E=4.8\text{meV}$)を達成し、放射光を併用することにより、高温超伝導体 Bi2212 及び LSCO の高分解能角度分解光電子分光を行った。

第二章 高分解能光電子分光装置の建設

2-1 装置の概要

図 2-1 に建設した装置の概要を示す。装置は主に、試料槽、電子エネルギー分析器(アナライザー)、光源系、及びそれらを超高真空に保つ真空排気系からなっている。装置建設は以下の基本理念に基づいて行った。

- (1)高エネルギー分解能達成のための大型アナライザーの使用
- (2)地磁気の影響の軽減のためのミューメタルシールドの使用
- (3)超高真空を得るための大排気容量ターボ分子ポンプの使用とその直列化
- (4)高輝度単色光での測定
- (5)冷凍機をマニピュレーターに直付けすることによる極低温下での測定
- (6)試料の劣化を抑えるための測定時の真空度の向上

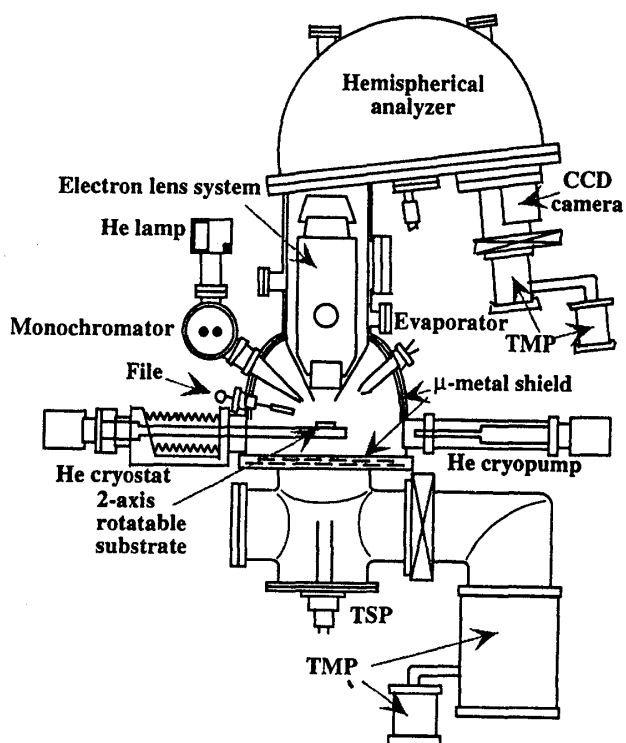


図 2-1 建設した光電子分光装置の概要図

2-2 試料槽

装置の中心部をなす試料槽 (図 2-2)には、真空排気系の他に、試料を固定するマニピュレーター、角度分解測定で試料を劈開したり、角度積分測定時に試料表面を研磨したりするためのダイヤモンドやすり、フェルミ準位の校正に用いる金の蒸着源、光を入射するための、Exit aperture, Exit stage、二次元角度分解機構が付属している。試料槽全体は、脱出光電子の軌道を変える地磁気を軽減するために透磁率の高い二重の

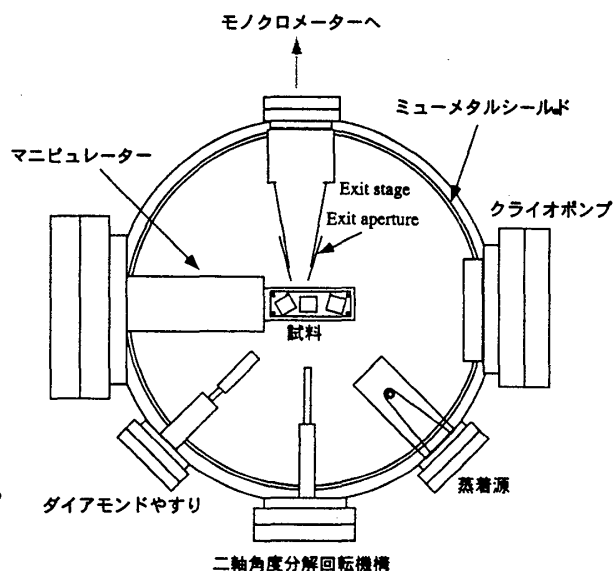


図 2-2 試料槽の概要図

ミューメタルシールドで覆ってある。また試料の劈開や研磨はすべて試料槽内で超高真空中で行えるようになっている。低温においては、真空中に微量に存在する N_2 や H_2 などが試料に吸着するのを軽減する目的で、気体ヘリウム循環型クライオポンプを設置しており、ガスの吸着及び超高真空化を図っている。

2-3 試料台、角度分解機構

マニピュレーター先端には、試料を取り付ける試料台が取り付けられており着脱可能になっている。角度分解測定には、アナライザーを動かす場合と、試料を動かす場合の主に2通りがあるが、この装置はアナライザー固定型のため、必然的に試料回転型になる。本装置では、マニピュレーターの根本に回転機構がついているため、一軸角度分解測定が実現される。試料台は、角度積分および1軸方向角度分解用の最も単純なものと、二軸角度分解専用の外部から回転を行えるもの（図2-3）の2種類を製作した。二軸角度分解を行うために、外部に回転機構を設置し、試料台とかみ合わせ回転させることによって、マニピュレータの回転によるブリルアンゾーン中の縦方向と、試料台の回転による横方向のスキャンを併用することによって、2次元ブリルアンゾーンの任意の点での測定が可能になっている。

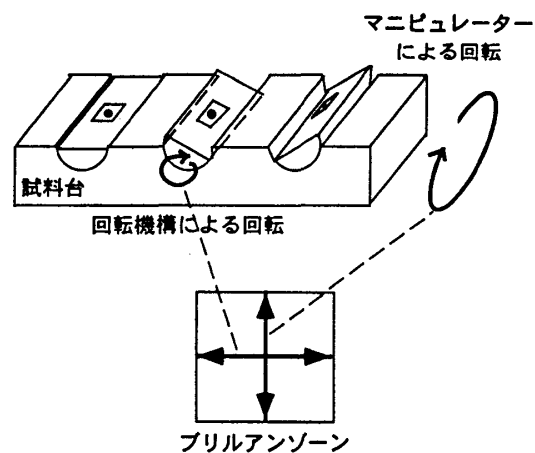


図2-3 二軸角度分解機構の概要図

2-4 温度制御系

試料の温度は、マニピュレーターに取り付けられた気体ヘリウム循環型クライオスタットと、電気ヒーターを併用することによって、13.5K～500Kの温度で制御可能である。マニピュレーターには、熱放射によって温度が上昇することを防ぐ目的で金メッキされた熱遮蔽シールドをかぶせてある。温度は、試料台周辺に取

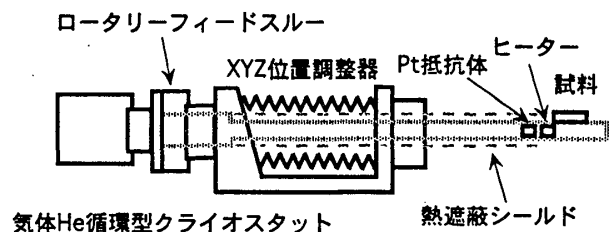


図2-4 気体Heクライオスタット使用時のマニピュレーター周辺図

り付けられた白金抵抗体によって測定される (図 2-4)。さらに、これとは別個に、装置には液体 He 型クライオスタットを装着できる。温度モニターはシリコンダイオードセンサーを、試料周辺及びクライオスタット先端に取り付けることによって行っている。電気ヒーターの出力と温度をフィードバックすることにより、精密な温度制御が実現している。到達温度として、クライオ根本では 2K, 試料基板手前では、4K の極低温を達成した。(図 2-5)

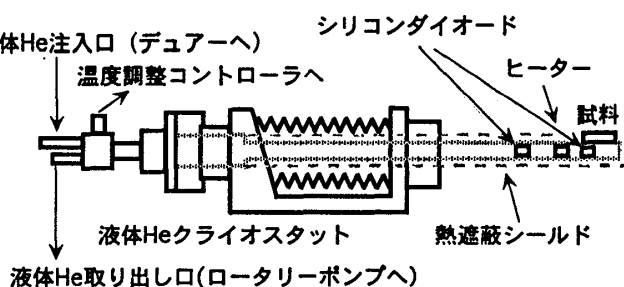


図 2-5 液体 He クライオスタット使用時のマニピュレーター周辺図

2-5 励起光源系

励起光源として、高輝度マイクロ波型放電管 (GAMMADATA-SCIENTA) を用いることによって、従来の高電圧印可型の He 放電管に比べて、10 倍から 100 倍の高強度を実現している。この放電管は、従来型高電圧印可型に比べて放電時の He の圧力が低いため、励起光エネルギー幅が狭く、例えば $\text{HeI}\alpha$ 線 (21.218 eV) では従来型の 3.0 meV に対し、1.2 meV と、格段に改善されている。さらに、放電管から出た光は複色光であり、光電子スペクトルに強いサテライト構造を生じさせる。これは、フェルミ準位近傍の微細電子構造を決定する上で、デメリットとなる。そこで、これらの問題を解決するために、放電管の下流にトロイダルグレーティングを装備したモノクロメーター (GAMMADATA-SCIENTA) を設置し、複色光の単色化を行った。その結果、 $\text{HeI}\alpha$ 、 $\text{HeI}\beta$ 、 $\text{HeII}\alpha$ 、 $\text{HeII}\beta$ 線をそれぞれ選択して、試料に照射することが可能になった。ここで、モノクロメー

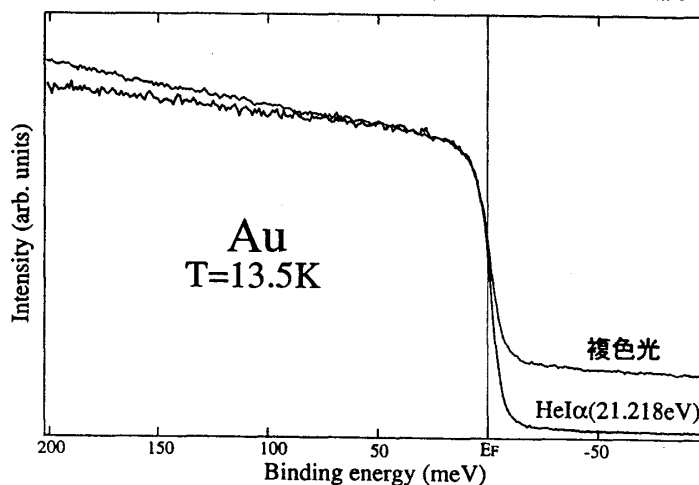


図 2-6 単色化の有無による金のフェルミ準位近傍の光電子スペクトルの比較

タの性能を評価するために、金の光電子スペクトルを、分光した $\text{HeI}\alpha(21.218\text{eV})$ 線、及び 0 次光で比較を行った。フェルミ準位近傍(図 2-6)では、この二つに顕著な違いが見受けられ、0 次光による測定では、フェルミ準位より上のバックグラウンドが高く、かつ状態密度の傾きも正確に再現し

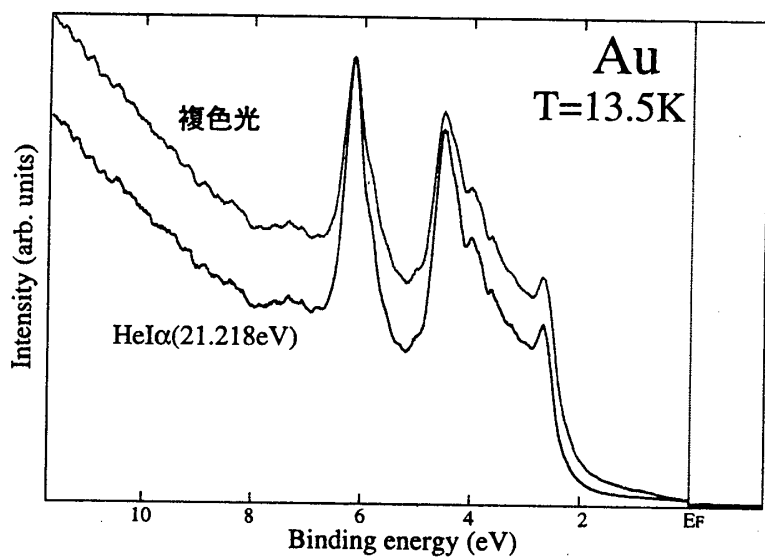


図 2-7 単色化の有無による金の価電子帯の光電子スペクトルの比較

ていないことがわかる。状態密度の傾きの違いは、0 次光を励起光源とした場合に、 $\text{HeI}\alpha$ によるフェルミ準位近傍の光電子スペクトルに、約 2eV 波長が異なる $\text{HeI}\beta$ による荷電子帯の裾がのっていることや、2 次電子の強度の違いのため生じられる。フェルミ準位より上のバックグラウンドの上昇は、 HeII 等のサテライトによる影響である。また、価電子帯のスペクトルに着目すると(図 2-7)、0 次光の場合は、単色化光に比べてスペクトルがブロードになっているように見え、2 次電子によるバックグラウンドの強度が増していることがわかる。以上の事から、単色光を用いた測定は、光電子スペクトルの詳細を議論する上で欠くことの出来ない要素の一つであると言える。

2-6 分解能向上、性能測定

光電子分光のエネルギー分解能は、(1)電子エネルギー分析器の分解能、(2)放電管からの光のエネルギー幅、(3)それ以外の影響、の主に 3 つの要素によって決定される。高エネルギー分解能化のために、(1)に関しては、大きな静電半球型アナライザーを使用し、アナライザーの測定電圧設定をソフトウェア的に微調整し、検出器部分のハードウェア的な設定を行うことによって分解能を向上した。(2)に関しては、前述の様に、高輝度でエネルギー幅の非常に狭い放電管を使用した。(3)に関しては、電源系の配線に工夫を凝らし、地磁気を軽減するミューメタルシールドを取り付け、アナライザーの消磁を行う事等により分解能を向上させた。図 2-8 にアナライザーの分解能を見積もるために測定した気体 $\text{Ar}3p$ 軌道の光電子スペクトルを示す。得

られたスペクトルの FWHM が 5.4meV であることから、Ar の持つドップラー幅を考慮して計算した結果、アナライザーが 2.8meV という超高分解能を達成した事がわかった。また、固体における分解能を見積もるために、標準試料として蒸着された金のフェルミ準位近傍の光電子スペクトルの測定を行った(図 2-9)。

13.5K におけるフェルミ分布関数を考慮に入れたフィッティング計算の結果、装置全体では、世界最高水準である 4.8meV という超高分解能を達成している事がわかった。ここで、測定前後で、フェルミ準位の見積もりは、誤差の範囲(0.1meV)でずれない事を明記しておく。

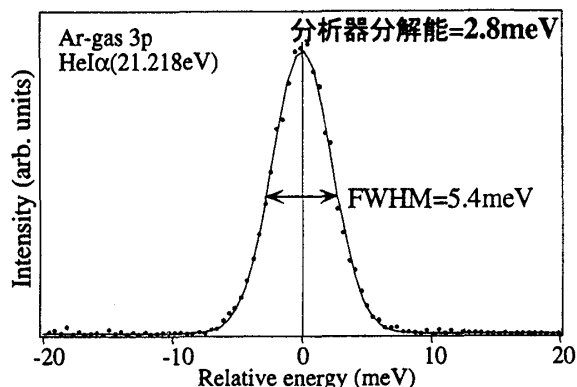


図 2-8 分解能最適化後の Ar3p の光電子スペクトル

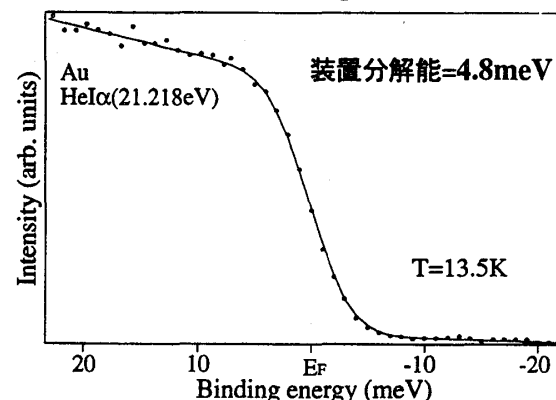


図 2-9 分解能最適化後の金のフェルミ準位近傍の光電子スペクトル

2-7 達成スペック

建設により得られた本装置のスペックを、以下に表としてまとめる。

アナライザーエネルギー分解能 (気体)	2.8meV
装置エネルギー分解能 (固体)	4.8meV
角度分解能	$\pm 1^\circ$
測定温度範囲	
気体 He 循環クライオスタット使用時	13.5K~500K
液体 He 循環クライオスタット使用時	4K~
到達真空度 (試料槽)	4.5×10^{-11} Torr
測定時の真空度	1.2×10^{-9} Torr

第三章 高温超伝導体 Bi2212 の角度分解光電子分光

3-1 研究背景

高温超伝導体 Bi2212 は、 T_c が $\sim 90\text{K}$ と高く、劈開が非常に容易であり、真空中で試料表面が安定なため、以前から精力的に角度分解光電子分光が行われてきた。その結果、ブリルアンゾーン (図 3-1) 中の (π, π) (X(Y)) 点を中心とした大きなホール的なフェルミ面を見出し[1]、超伝導ギャップの波数依存性を直接観測する

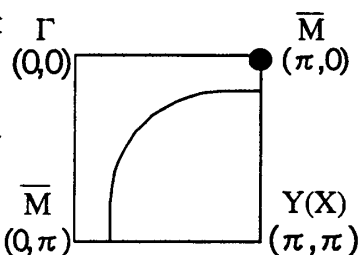


図 3-1 Bi2212 のブリルアンゾーン

ことにより超伝導ギャップが異方的な dx^2-y^2 波対称性をもつ事が明らかになり[2,3]、さらに、アンダードープ領域で T_c よりも上の温度で、常伝導擬ギャップが存在し、ある温度 T^* で閉じる[4-7]事が報告されてきた。更に、ブリルアンゾーン中の複数の点での温度変化を測定する事により、 T^* よりも上で存在していた閉じたフェルミ面が、 T^* 以下になると $(\pi, 0)$ 点(M 点)を中心としてギャップが開き始め、とぎれた形状をもつギャップレスフェルミアークが、そのまま超伝導状態の dx^2-y^2 波的なギャップに移行することが明確に観測されている(図 3-2)[7]。この実験事実は角度分解光電子分光で観測された擬ギャップが、超伝導と密接に関係していることを示唆している。

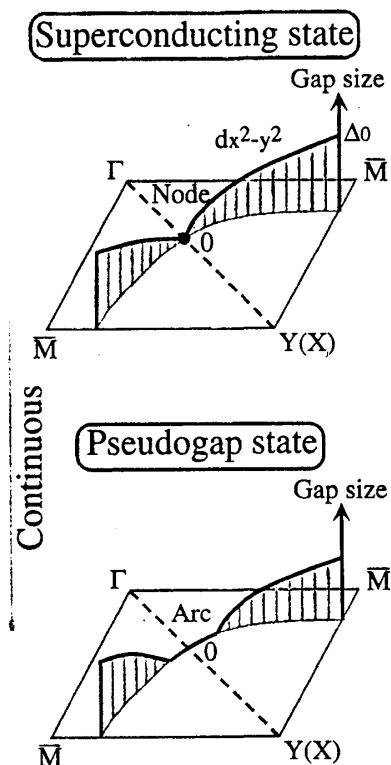


図 3-2 ギャップの大きさの波数、温度依存性

3-2 本研究の目的

角度分解光電子分光によって見出されたアンダードープ領域における擬ギャップは、他の実験で観測される異常や超伝導機構との兼ね合いから精力的な議論がなされてきた。しかしながら、擬ギャップの起源に関しては未だ統一見解が得られていない。この問題に関して、光電子分光のエネルギー分解能を更に高め、 T_c 前後のより詳細な電子状態の温度変化をとらえることが出来れば、擬ギャップの起源に関してのアプローチが可能になると考

えられる。更に、擬ギャップは前述のように温度減少とともにブリルアンゾーン中の $(\pi, 0)$ 点 (M 点)から開き始めることが報告されており[7]、この事は、 $(\pi, 0)$ 点における光電子スペクトルの形状と擬ギャップが密接に関係しているということを表している。つまり、 $(\pi, 0)$ 点付近の光電子スペクトルの系統的測定（運動量、温度、ドーピング依存性）を行い、解析することによっても、擬ギャップの起源が明らかになると考えられる。本研究では、最近建設した超高分解能光電子分光装置と放射光施設を併用することによる、Bi2212 の角度分解光電子分光の結果について報告し、擬ギャップの起源について考察する。

3-3 実験

Bi2212 単結晶試料は、筑波大理工の門脇和男教授、金材技研の茂筑高士博士から提供して頂いた。光電子分光実験は、建設した超高分解能光電子分光装置と米国ウィスコンシン放射光施設 4m-NIM (Normal Incidence Monochromator) beam line を用いて行った。前者については、分解能 7meV、励起光源 HeI α 線(21.218eV)を用い、後者については、分解能 17meV $\sim$ 30meV、励起光エネルギー 22eV を用いた。光電子分光に必要な清浄表面は 10×10^{-14} Torr 台の超高真空下で試料を劈開することによって得た。

3-4 結果と考察

図 3-3 に、超高分解能光電子分光装置を用いて測定された最適ドーピング Bi2212 の $(\pi, 0)$ 点での超高分解能光電子スペクトル ($\Delta E=7\text{meV}$)の温度変化を示す。得られた光電子スペクトルは、低温でフェルミ準位近傍に鋭いコヒーレントピークを形成し、温度上昇とともにその強度を落とす一方で、フェルミ準位上の強度は温度上昇とともに系統的に上昇している。それと同時にスペクトルの立ち上がりの中点がフェルミ準位に近づいていくことが明確に観測されており、これはギャップが徐々に閉じていくことに対応する。また、 T_c 前後のスペクトルの変化に着目す

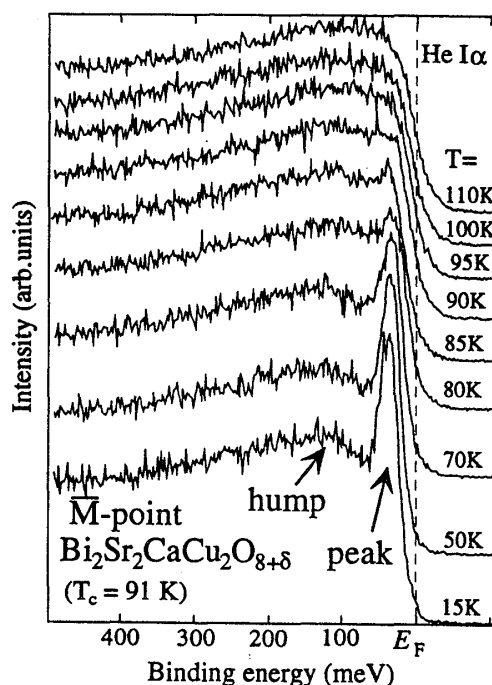


図 3-3 最適ドーピング Bi2212($T_c=91\text{K}$)の M 点における光電子スペクトルの温度変化

ると、コヒーレントピークはちょうど T_c で消えている。超伝導相から擬ギャップ相に移り変わるに連れて、スペクトルに何ら不連続な変化が見受けられないことから、擬ギャップは超伝導と密接に関係している先駆現象である可能性が示唆される。また、フェルミ分布関数の効果を消して生のスペクトル関数の温度変化を得るために、スペクトルの対称化解析[7]を行った(図 3-4)。90K~120K までのスペクトルに、130K のスペクトルを重ねて示した。110,120K のスペクトルは 130K のものと良く重なる一方で、90-100K のスペクトルは、130K とずれが生じる。このことは、最適ドープでも擬ギャップが開いており、 T^* が $\sim 110\text{K}$ である事を示している。また、コヒーレントピークの幅の解析の結果、分解能 7meV での測定におけるピーク幅は約 25meV であり、コヒーレントピークは Resolution limited ではないことが明らかになった(図 3-5)。さらに、放射光を使った $(\pi, 0)$ 点における光電子スペクトルのドーピング依存性の測定の結果、超伝導ギャップのサイズはキャリアー濃度増加とともに小さくなり、超伝導ギャップのサイズと、角度分解光電子分光で決定した T^* の間に、大まかな比例関係があることがわかった。このことから、擬ギャップは、超伝導と密接に関係し、何らかのペアリングによる可能性が高いことが示唆される。

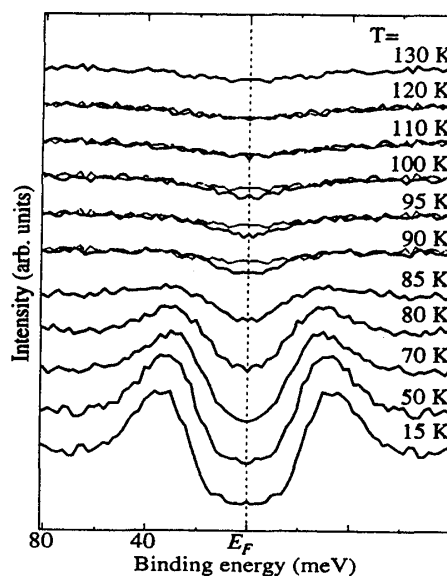


図 3-4 得られたスペクトルを対称化[7]したもの

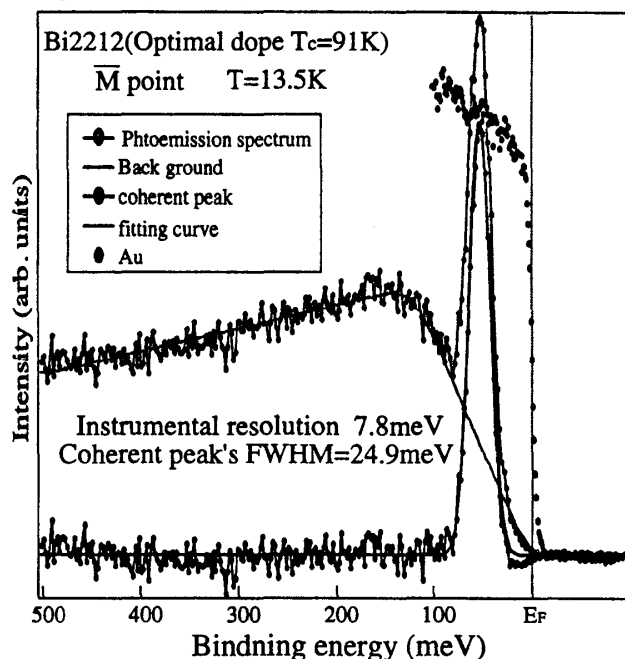


図 3-5 コヒーレントピークの幅の解析結果

第四章 高温超伝導体 LSCO の角度分解光電子分光

4-1 研究背景

高温超伝導体 $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{Cu}_2\text{O}_4$ (LSCO) は、1 枚の CuO_2 面を持つことから、二枚を有する $\text{Bi}_2\text{212}$ に比べてより単純な CuO_2 面に関する情報が得られることが期待される。さらに、La を Sr で置換してドーピング量を制御する事から、 $\text{Bi}_2\text{212}$ に比べて幅広いドーピング量での系統的な測定が可能である。常伝導状態におけるアンダードーピング領域でも、様々な物性における異常が報告されている。だが残念なことに、 T_c が比較的低い ($\sim 40\text{K}$) ため超伝導ギャップサイズが小さいと期待されること、角度分解測定に必要な劈開が非常に困難なこと等から、光電子分光におけるギャップの測定は行われていなかった。その中でも、最近 A. Ino らは、精力的な光電子分光のドーピング依存性の測定により、最適ドーピング、アンダードーピング領域で $0.1\sim 0.2\text{eV}$ の大きさをもつ、“high-energy pseudogap”を報告している[8]。しかしながら、“high-energy pseudogap”が、 $\text{Bi}_2\text{212}$ で観測される様な“small pseudogap”にどう関連しているのか、さらに超伝導ギャップとどう関係しているのかは、温度変化の報告がされていないことや、これまで分解能が超伝導ギャップを直接観測するには必ずしも十分では無かったことなどから、はっきりはしていない。

4-2 本研究の目的

前述の“high-energy pseudogap”と“small pseudogap”が全ての高温超伝導体に普遍の特徴であるのかどうか、それらがどのように関連しているのかどうかを知るためには、超伝導ギャップと同じか、それ以上のエネルギー分解能での光電子分光の温度変化を測定する必要がある。本研究では、建設した超高分解能光電子分光装置を用いて最適ドーピング $\text{La}_{1.85}\text{Sr}_{0.15}\text{CuO}_4$ の超高分解能光電子分光を行った。

4-3 実験

最適ドーピング $\text{La}_{1.85}\text{Sr}_{0.15}\text{CuO}_4$ 単結晶試料 ($T_c=38\text{K}$) は、京都大学化学研究所の山田和芳教授から提供して頂いた。光電子分光は、建設した超高分解能光電子分光装置を用いて行い、励起光源として $\text{HeI}\alpha$ 線 (21.218eV) を用いた。測定に必要な清浄試料表面は、超高真空中で試料を 30 分毎に研磨することによって得た。

4-4 結果と考察

図 4-1(a)に、最適ドーピング $\text{La}_{1.85}\text{Sr}_{0.15}\text{CuO}_4$ ($T_c = 38\text{K}$)の超高分解能光電子スペクトルの温度変化を示す (挿入図は金の温度変化)。典型的な金属である金はフェルミ準位(E_F)をはさんで対称的な温度変化を示し、スペクトルの交点が温度変化に際して全て E_F 上で交わっているのに対し、LSCO はスペクトルの交点が全ての温度領域にわたって高結合エネルギー側に位置し、 E_F の強度が 250K という高温においても系統的に上昇していることがわかる。これは、常伝導状態において E_F 近傍で状態密度の変化があることを意味している。そこで、状態密度の温度変化を明確にするために、スペクトルを装置分解能でコンボリューションした各温度におけるフェルミ分布関数で割った[9]ものを図 4-1(b)に示す。この図は基本的には状態密度に対応するものであると見なせる。この図から、温度上昇とともに、フェルミ準位近傍約 30meV の範囲の強度が系統的に上昇しているのに対し、それより高結合エネルギー側の 100-150meV の範囲ではスペクトル強度が減少していることがわかる。これは、温度上昇に伴い、100-150meV から 30meV- E_F にスペクトルウェイトの移動があり、低温で開いた擬ギャップが徐々に閉じていくことを意味している。フェルミ準位近傍をより詳しく見ると(図 4-1(c))、スペクトルの温度変化は、常に 30-35meV で起こっており、温度によらない。この値は、A. Ino らによる "high-energy pseudogap"[5]のエネルギーの約 1/3 に対応する。また、超伝導状態の光電子スペクトルからフィッティングにより超伝導ギャップの大きさを見積もった。始めに、超伝導ギャップの対称性として、s 波と d 波の両方を仮定した BCS 関数によるフィッティングを行った。得られた計算結果は実験データを良くは再現していない。そこで、何らかのブロードニング機構が働いている

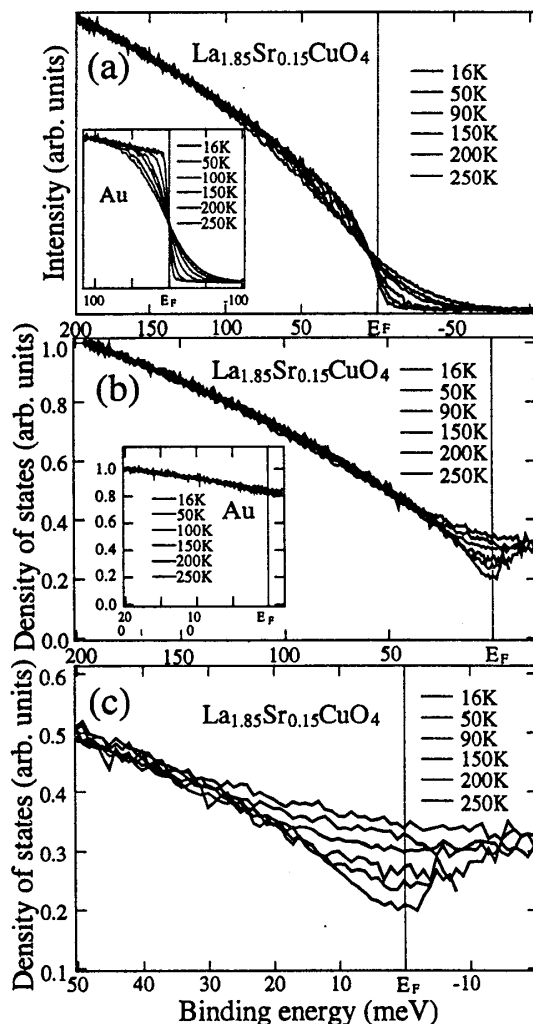


図 4-1 (a)LSCO の E_F 近傍の光電子スペクトル (b)得られた状態密度、(c)その拡大図

と考へて、BCS 関数にブロードニングをかけた Dynes の式を用いてフィッティングを行った (図 4-2)。得られた結果から、超伝導ギャップの大きさ(最大値)は $8 \pm 1 \text{ meV}$ であり、ここから $2\Delta/kBT_c \sim 5.2$ と見積もられる。この結果は、中性子散乱で得られた $2\Delta/kBT_c \sim 6$ [10] や、Bi2212 における $2\Delta/kBT_c \sim 5.5$ [11] に良く対応する。超伝導ギャップの大きさが観測した擬ギャップのエネルギースケールに比べてが数倍小さいことから、LSCO で観測された擬ギャップは超伝導ギャップとは起源が異なる事が示唆

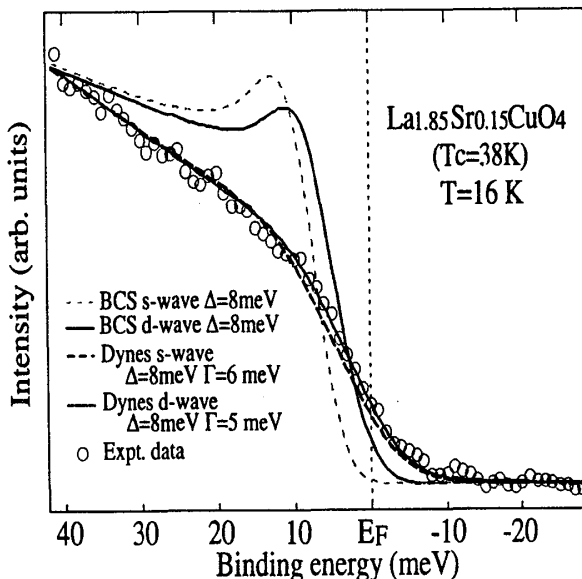


図 4-2 超伝導状態(16K)の光電子スペクトルのフィッティング結果

される。本実験における特徴的なエネルギースケールである 30-35 meV (温度に換算して $\sim 400 \text{ K}$)は、磁化率が最大値を持つ温度 T_{max} ($\sim 400 \text{ K}$ at $x=0.15$) [12] や、ホール係数が温度減少とともに増加し始める温度 ($\sim 500 \text{ K}$) と良く対応している。このことから、この測定で観測された光電子スペクトルの温度変化は、反強磁性相関の発達に対応するものである事が考えられる。以上の事から、本実験で観測された LSCO の擬ギャップは Bi2212 の角度分解光電子分光で観測された、ペアリングが関係していると思われる擬ギャップとは異なっている事が示唆される。今後二つの擬ギャップの相互関係や起源、さらに超伝導機構との関係を明らかにする必要がある。

第五章 まとめ

高温超伝導体のフェルミ準位近傍の微細電子構造を明らかにするために超高分解能光電子分光装置の建設を行った。建設した装置は以下の特徴を持つ。

- (1) 超高エネルギー分解能 ($\Delta E = 4.8 \text{ meV}$) の達成
- (2) 極低温下 (4 K $\sim$) での測定
- (3) 高輝度単色光での測定
- (4) 2 軸角度分解光電子分光の実現

(5) 超高真空下(4.5×10^{-11} Torr)での測定

・建設した装置と放射光施設を用いて高温超伝導体 Bi2212 の角度分解光電子分光を行った。その結果以下の事を見出した。

- (1) 最適ドープでも擬ギャップが存在し、 $T^*=110\text{K}$ である
- (2) 擬ギャップは超伝導ギャップから連続的につながる
- (3) コヒーレントピークは Resolution limited では無い
- (4) 超伝導ギャップの大きさのドープ量依存性は T^* にほぼスケールする

以上の結果から、角度分解光電子分光で見出された擬ギャップは、超伝導と密接に関係した先駆現象で、ペアリングに関係している事を示唆している。

・建設した装置を用いて高温超伝導体 $\text{La}_{1.85}\text{Sr}_{0.15}\text{CuO}_4$ の角度分解光電子分光を行った。その結果以下の事を見出した。

- (1) 常伝導状態において、 E_F 近傍で 30-35 meV 程度の擬ギャップが存在する
- (2) 擬ギャップは温度上昇とともに閉じていき、そのウェイトを高結合エネルギー側に移動する
- (3) 少なくとも室温程度まで、 E_F 近傍の状態密度は変化する
- (4) 得られたスペクトルの温度変化は、磁化率やホール係数と良く対応する
- (4) フィッティングにより得られた超伝導ギャップの大きさは 8 meV

以上の結果から、LSCO で観測された擬ギャップは Bi2212 の角度分解光電子分光で観測された、ペアリングが関係していると思われる擬ギャップとは異なり、反強磁性相関の発達によるものである事が示唆される。今後二つの擬ギャップの相互関係や起源、さらに超伝導機構との関係を明らかにする必要がある。

参考文献

- [1] H. Ding et al., Phys. Rev. Lett. 78, 2628 (1997).
- [2] Z.-X. Shen et al., Phys. Rev. Lett. 70, 1553 (1993).
- [3] H. Ding et al., Phys. Rev. B 54, R9678 (1996).
- [4] D. S. Marchall et al., Phys. Rev. Lett. 76, 4841 (1996).
- [5] H. Ding et al., Nature 382, 51 (1996).
- [6] A. G. Loeser et. al., Science 273, 325 (1996).

- [7] M. R. Norman et al., Nature 392, 157 (1998).
- [8] A. Ino et al., Phys. Rev. Lett. 81, 2124 (1998).
- [9] H. Kumigashira et al., Phys. Rev. Lett. 82, 1943 (1999).
- [10] K. Yamada et al., Phys. Rev. Lett. 75, 1626 (1995); K. Yamada et al., Phys. Rev. B 57, 6165 (1998).
- [11] T. Yokoya et al., Solid State Comm. 87, 553 (1993).
- [12] T. Nakano et al., Phys. Rev. B 49, 16000 (1994).
- [13] T. Nishikawa et al., J. Phys. Soc. Jpn. 63, 1441 (1994); H. Y. Hwang et al., Phys. Rev. Lett. 72, 2636 (1994).

謝辞

高橋隆助教授には、本研究のテーマを与えていただくとともに、熱心で懇切丁寧なご指導のもとで修士論文を書き上げることができたことを深く感謝いたします。

横谷尚陸博士、組頭広志氏には、研究を行うに当たっての心構え、データ解析や実験の手法、論文の書き方、有益な議論など、多大なご指導をいただいた事を深く感謝します。

共同研究をしていただいた、名古屋大学の竹内恒博博士、ボストン大学の H. Ding 博士、米国アルゴンヌ研究所、イリノイ大学の A. Kaminski 氏、H. Fretwell 博士、J. Mesot 博士、M. R. Norman 博士、J. C. Campuzano 教授には深く感謝いたします。

Bi2212 の単結晶試料を提供していただいた科学技術庁金属材料研究所の門脇和夫教授、筑波大学物質工学系の茂筑高士博士、LSCO の試料を提供していただいた京都大学化学研究所の山田和芳教授に深く感謝いたします。

実験方法、データの解釈等で多大なご指導をいただき、さらに、光電子分光法や固体物理の基礎のみならず、研究の心構えから熱心にご教示いただいた、本研究室の佐藤繁教授、鈴木章二助教授、田中章順助手、金亨度博士、A. Chainani 博士に深く感謝いたします。

藤澤英樹氏、伊藤孝寛君、内藤寧典君、中井俊之君、ディヌ・イオネル君、神山知之君、相馬清吾君及び佐藤健技官をはじめとする本研究室の諸兄姉に深く感謝いたします。

最後に、このような機会を与えていただき、精神的にも経済的にも支えていただいた両親に深く感謝いたします。